

FP

**Application date:** 19.10.83

**Open for public inspection:** 9.5.85

**Description:** Catalyst arrangement

**Applicants and inventors:**

Reif, Gerhard, 7114 Windischenbach, DE, Baum, Werner, 7101 Flein, DE

---

**Catalyst arrangement**

A catalyst arrangement for the reduction and oxidation of pollutants in hot, oxidising exhaust gases has an oxidising zone (10) in the flow direction of the exhaust gas, and behind this a reducing zone (11). The region favouring oxidation is preferably built up as a catalyst filter (10). In this way it is possible for example to filter out an exhaust gas and to combust this into carbon dioxide. By using oxygen in oxidising exhaust gas, only a weak oxidising pollutant reaches the reducing catalyst zone (11), which as a result can operate particularly effectively.

The catalyst arrangement is particularly suitable for converting pollutants in the exhaust gases of diesel engines.

17 October 1983

**Catalyst arrangement**

**CLAIMS**

1. Catalyst arrangement (15) having a reduction-favouring catalyst zone (11) and an oxidation-favouring catalyst zone (10) for the conversion of pollutants in hot, oxidising exhaust gases into non-deleterious substances, characterised in that the reducing zone (11) is arranged in the flow direction of the exhaust gas downstream of the oxidising zone (10).
2. Arrangement according to Claim 1, characterised in that the oxidising zone is a catalyst filter (10) for filtering out and combustion of carbon (20).
3. Arrangement according to Claim 2, characterised in that the catalyst filter (10) and the reducing catalyst zone (11) are combined in one catalyst component.

4. Arrangement according to Claim 2 or 3, characterised in that the catalyst filter (10) has a catalyst applied to a metallic wire cloth gauze.
5. Arrangement according to Claim 2 or 3, characterised in that the catalyst filter (10) has a catalyst material arranged in a fibre mat (fleece).
6. Arrangement according to one of Claims 2 to 5, characterised in that the catalyst material of the catalyst filter (10) is iron oxide.
7. Arrangement according to one of Claims 1 to 6, characterised in that the arrangement according to Claim 1 constitutes a first arrangement of parts to which a second arrangement of parts is connected in terms of exhaust gas-stream in parallel, in which a second reducing catalyst zone (11.2) is located upstream of a second oxidising catalyst zone (10.2) (Fig. 2).
8. Arrangement according to Claim 7, characterised in that the second oxidising zone is also formed as catalyst filter (10.2).
9. Arrangement according to Claim 7 or 8, characterised in that a  $\lambda$  probe (13) is arranged up stream of the two part arrangements, which conducts the exhaust gas into the first part arrangement when it is operating in oxidising mode and into the second part arrangement when it is operating in reducing mode.
10. Arrangement according to one of Claims 1 to 9, characterised by the use in the exhaust gas stream of a diesel engine.

## SPECIFICATION

The invention relates to a catalyst arrangement according to the generic part of the main claim.

Such an arrangement is known from DE-AS 26 49 825. An oxidising exhaust gas from an internal combustion engine is fed to the arrangement which is divided, into two in such a way that the first zone promotes reduction and the second zone promotes oxidation. The nitrogen oxides  $\text{NO}_x$  are reduced, and the carbon monoxide CO is for example oxidised. The first reducing zone is coated with rhodium and/or iridium as catalyst material. These precious metals are also able to bring about the reduction of nitrogen oxides  $\text{NO}_x$  in oxidising atmospheres. The second zone is coated with platinum and/or palladium as catalyst material. These elements favour the oxidation of carbon monoxide CO and of hydrocarbons HC.

The known catalyst arrangement is very expensive because it only uses precious metals as catalyst materials. It is desirable to use cheaper catalyst materials which however frequently fall behind the precious metals to some extent in their activity.

The technical problem of the invention is based on a catalyst arrangement of the type cited at the beginning, which gets by without impairments of its efficiency even with more weakly active and less expensive catalyst materials, or has a higher efficiency when using the same materials.

The solution according to the invention is characterised in the main claim.

Advantageous embodiments and improvements are the subject of dependent claims.

reducing zone in the flow direction of the exhaust gas is no longer arranged upstream of but rather downstream of the oxidising zone. This arrangement is based on the knowledge that in arrangements according to the state of the art (as are known from DE-AS 26 49 825 as well as in a similar way from DE-OS 21 58 877 and DE-AS 21 39 774), the reducing zone is fed more oxygen than the oxidising zone. However, particularly good catalysts must then be used, to be able to favour the reduction in oxidising atmosphere and alternatively to favour oxidation in atmosphere weakened in its oxidising force. On the other hand, in the structure according to the invention the maximum amount of oxygen is available for the oxidation from the exhaust gas, whilst in the reducing zone, the oxygen component is already reduced because of the previously performed oxidation of certain pollutants of the hot exhaust gas.

The arrangement in the exhaust gases (which contain carbon components) according to the invention operates particularly effectively if the carbon component is filtered out in the oxidising zone and combusted there. Such a catalyst filter is known from DE-OS 29 51 316. As catalyst material, metal or a metal oxide is applied to a wire cloth gauze.

It has however been shown more advantageous to apply the catalyst material not onto a wire cloth gauze but onto a non-woven fleece, or to introduce the catalyst into the non-woven fleece in powder form: this can be either in the manufacture of this or by subsequent immersion in a dispersion of the catalyst powder.

The burn-off temperature of filtered-out carbon is then quite particularly reduced if iron oxide,  $\text{Fe}^{\text{II}}\text{Fe}_2^{\text{III}}\text{O}_4$  is used to favour the burning off.

Exhaust gases from gas generators which give off exhaust gases in different load ranges and which release either oxidising or reducing exhaust gases, it is advantageous to connect a catalyst arrangement according to the invention with a known parallel arrangement, with which a reducing catalyst zone is located upstream of an oxidising zone. The changeover between the two parallel-located part arrangements is performed by a  $\lambda$  probe in the exhaust gas flow, which determines whether the exhaust gas is oxidising or reducing.

Exhaust gas generators which predominantly deliver oxidising exhaust gases are for example diesel engines. The use of a catalyst arrangement according to the invention is therefore particularly advantageous with these engines, particularly if the oxidising zone is formed as catalyst filter.

The invention is explained in greater detail below on the basis of figures. These show:

Figure 1 A flow diagram on the flow of exhaust gas through different catalyst zones.

Figure 2 A flow diagram of the flow of exhaust gas through different catalyst zones of two reversible catalyst part arrangements.

Figure 3 A schematic cross-section through a catalyst arrangement arranged in a housing.

According to Fig. 1, an oxidising exhaust gas such as from a diesel engine, flows into a catalyst filter 10. The exhaust gas contains for example nitrogen oxides ( $\text{NO}_x$ ), hydrocarbons (HC), carbon monoxide (CO) and carbon (C). The catalyst filter 10 acts in oxidising mode and therefore represents the oxidising zone of a catalyst arrangement. According to this, hydrocarbon substances are converted with oxygen into water by the catalyst and carbon dioxide and carbon monoxide

also combusted into carbon monoxide.

The exhaust gas leaving the catalyst filter 10 contains no further oxidisable components, and particularly no carbon. By the conversion of the oxidisable gas components, and because of the combustion of the carbon, the exhaust gas leaving the catalyst filter 10, but more weakly oxidising than the exhaust gas which has been introduced into it. This more weakly oxidising exhaust gas is fed to a reducing catalyst zone 11, in which, in the still oxidising atmosphere, nitrogen oxide NO<sub>x</sub> is cracked into nitrogen and oxygen. Catalyst materials which make possible such reduction in oxidising atmospheres are for example rhodium or iridium or Raney cobalt.

Thanks to the action of the catalyst arrangement with the oxidising-acting catalyst filter 10 and the reducing-acting catalyst zone 11, the listed pollutants are finally converted into water, carbon dioxide, nitrogen oxide, and hydrogen.

It is also possible to use the arrangement according to Fig. 1 as a part arrangement together with a conventional arrangement, as shown in Fig. 2. This is recommended if the exhaust gas (independently of different combustion conditions) can act once in oxidising mode and once in reducing mode - as occurs particularly with exhaust gases from diesel engines and from domestic fuels. For this purpose, a  $\lambda$  probe 13 is connected from the exhaust gas generator into the exhaust gas line 12. This type of  $\lambda$  probe determines whether or not gas atmospheres from exhaust gases contain an oxygen surplus in relation to oxidisable exhaust gas components, ie whether the exhaust gas is oxidising or reducing. If an oxidising exhaust gas is stipulated, then a changeover takes place to an upper part arrangement (which is also built up like the arrangement in Fig. 1) and which has a first catalyst filter 10.1 and a first reducing catalyst zone 11.1.

switches it over to the second part arrangement shown in Fig. 2 (lower), which is designed similarly to the conventional catalyst arrangements. It must however be noted that for the oxidising-acting catalyst zone with the lower part arrangement, a second catalyst filter 10.2 is used, which is not known from conventional arrangements in which filtering oxidising catalyst zones are not used.

The lower part arrangement according to Fig. 2 has upstream of the second catalyst filter 10.2 (already mentioned) a second reducing catalyst zone 11.2. After changeover by the  $\lambda$  probe, the reducing exhaust gases from the exhaust gas line 12 are fed to this. A conversion of nitrogen oxides  $\text{NO}_x$  into nitrogen and oxygen then takes place. The exhaust gas from the reducing-acting catalyst zone 11.2 is mixed with oxygen, an oxidising exhaust gas being formed which still has hydrocarbons, carbon monoxide and carbon C. The oxygen fed-in originates from fed-in combustion air and this is also controlled by the  $\lambda$  probe 13.

The carbon is filtered out in the second catalyst filter 10.2 and is combusted to carbon dioxide  $\text{CO}_2$  at low temperature. In this oxidising-acting catalyst zone, the hydrocarbons and the carbon monoxide are also converted into water and carbon dioxide.

The changeover by the  $\lambda$  probe 13 enables the pollutants in oxidising gases always to be converted with optimum efficiency into water, carbon dioxide, nitrogen and oxygen.

With the flow diagrams according to Figs. 1 and 2, the oxidising-acting catalyst zones are formed as catalyst filters 10. As mentioned above, these filters are then used if the exhaust gas contains carbon, for example from a diesel engine or from domestic fuel. In this case the applicable arrangement acts particularly strongly because a particularly strong production of the oxidising component in the exhaust gas then takes place, so that the connected reducing catalyst zone can operate particularly effectively. For exhaust gases which contain no carbon,

such as the exhaust gases from internal combustion engines it is however also possible to form the oxidising catalyst zone in conventional type and manner, ie non-filtering.

The cross section shown in Fig. 3 shows a catalyst arrangement 15 in a housing 14. This has an internal sheet-screen cylinder 16.1 and arranged concentrically with this is another sheet-screen cylinder 16.2. These are built up exactly as conventional sheet-screen cylinders for air filters.

The two sheet-screen cylinders 16.1 and 16.2 are used as supports for a non-woven fleece 17 of inorganic oxide fibres. Raney powder is embedded into the oxide fibres as catalyst material. This material is particularly effective for the reduction of nitrogen oxides NO<sub>x</sub>, also in oxidising atmosphere.

A star filter 18 which is coated with an oxidation-acting catalyst material is connected outwards to the middle sheet-screen cylinder 16.2. The star filter 18 acts as catalyst filter 10 according to Figs. 1 and 2. The star filter 18 consists of a "metal fabric", and is therefore self-supporting and requires no further support. If however the star filter is manufactured from a non-woven fleece then an external sheet-screen cylinder 16.3 is arranged outside of it. This is shown with a dotted line in Fig. 3.

Oxidising exhaust gas, which contains nitrogen oxides NO<sub>x</sub>, hydrocarbons HC, carbon monoxide CO and carbon C is fed through a feeding opening 19 to the interior of the housing 14 and thus to the catalyst arrangement 15. It flows through the outer sheet-screen cylinder 16.3 and the star filter 18, by which however the carbon particles contained in the exhaust gas are retained. The carbon particles 20 are shown in Figure 3 as individual grains, although they in fact form agglomerates of different sizes. These carbon particles 20 and a carbon layer formed from them are burnt off at the star filter 18 at relatively low exhaust gas temperatures of about 300°C. In this case oxygen is used so that only poorer oxidising exhaust gas flows through the central sheet-screen cylinder 16.2 to the

into nitrogen. Exhaust gas then flows into the interior of the inner cylinder 16.1: the exhaust gas contains no pollutants but only the conversion products water, carbon dioxide, hydrogen and oxygen. This exhaust gas is fed through an opening (not shown).

The structure according to Fig. 3 can experience numerous modifications. It must be noted particularly that the feeding opening 19 into the housing 14 is shown somewhat schematically. A feed is chosen which produces the optimum flow behaviour. This is particularly important if the catalyst arrangement 15 is used with an internal combustion engine. Depending on the exhaust gas generator, the exhaust gases of which must be converted, pollutants will arise which are more reducing or more oxidising. Dependent on this, the design must be selected, particularly the dimensions in the flow direction of the oxidising and reducing catalyst zones.

The star filter 18 can for example consist of a wire cloth gauze coated with metal or metal oxides as catalyst materials, as described in DE-OS 29 51 316. A greater depth of the star filter 18 in the flow direction of the exhaust gases is achieved if a non-woven fleece is used instead of a metal gauze, into which oxidising, catalytically active constituents are embedded. If using a such a non-woven fleece, the mesh size is greater than the mean diameter of carbon particles, which are however retained because of the numerous fibres following one another. Before their agglomeration, the carbon particles have a diameter of about 25 to 250 nm.

Material such as those described as "Cerablancket" or "Cerachrome" which can be obtained from Manville (France) can for example be used as non-woven fleece. The catalytically-active material can be introduced into a non-woven fleece of this type either by the manufacture of the fleece or by subsequent immersion into a

The burn-off temperature of carbon is normally about 800°C. If the carbon is filtered out with a non-woven fleece, the burn-off temperature decreases to around 560 to 580°C, because such types of fleece are already catalytically active, particularly if they contain  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Furthermore, the burn-off temperature can be reduced if iron oxide  $\text{Fe}^{\text{II}}\text{Fe}_2^{\text{III}}\text{O}_4$  is used as catalytically-active material. This applies quite generally, irrespective of whether this material is used together with a reducing zone or only in itself. With iron oxide as catalyst, either on a metal gauze or in a non-woven fleece, the burn-off temperature can be decreased to about 300°C.

For the non-woven fleece 17 which contains the reducing-acting catalyst material, the corresponding situation, which has been quoted just now for a non-woven fleece for the absorption of oxidising-acting catalyst materials also applies. The Raney cobalt in powder form is particularly suitable as a nitrogen oxide reducing catalyst material. This can however be applied embedded on a metallic support instead of in a non-woven fleece. This must then be arranged so that a particularly large effective surface is obtained for the through-flowing exhaust gas.

The arrangement presented operates particularly effectively because the oxidation of pollutants is performed whilst the exhaust gas still contains a particularly large amount of oxidising agent, and the reduction only takes place if a part of the oxidising agent has already been brought into the oxidising-acting zone. If catalysts of the same quality as previously are used, an improvement in the activity is obtained. If cheap but less active catalysts are used, the same activity level is achieved as previously.

The increased effectiveness of the arrangement also makes it possible to construct the arrangement more compactly without impairment of the efficiency. Hence, a catalyst filter in particular and the reducing zone can be combined into one catalyst component.

### Keys

Oxidierendes Abgas	Oxidising exhaust gas
Katalysator	Catalyst
Schwäcker oxidierendes Abgas ohne Russ:	
	More weakly oxidising exhaust gas without carbon
Reduz. Katalysatorbereich	Reducing catalyst zone
Umgewandeltes Abgas	Unconverted exhaust gas
$\lambda$ Sonde	$\lambda$ probe
Oxidierendes Abgas mit ..	Oxidising exhaust gas with ..
Russ	Carbon

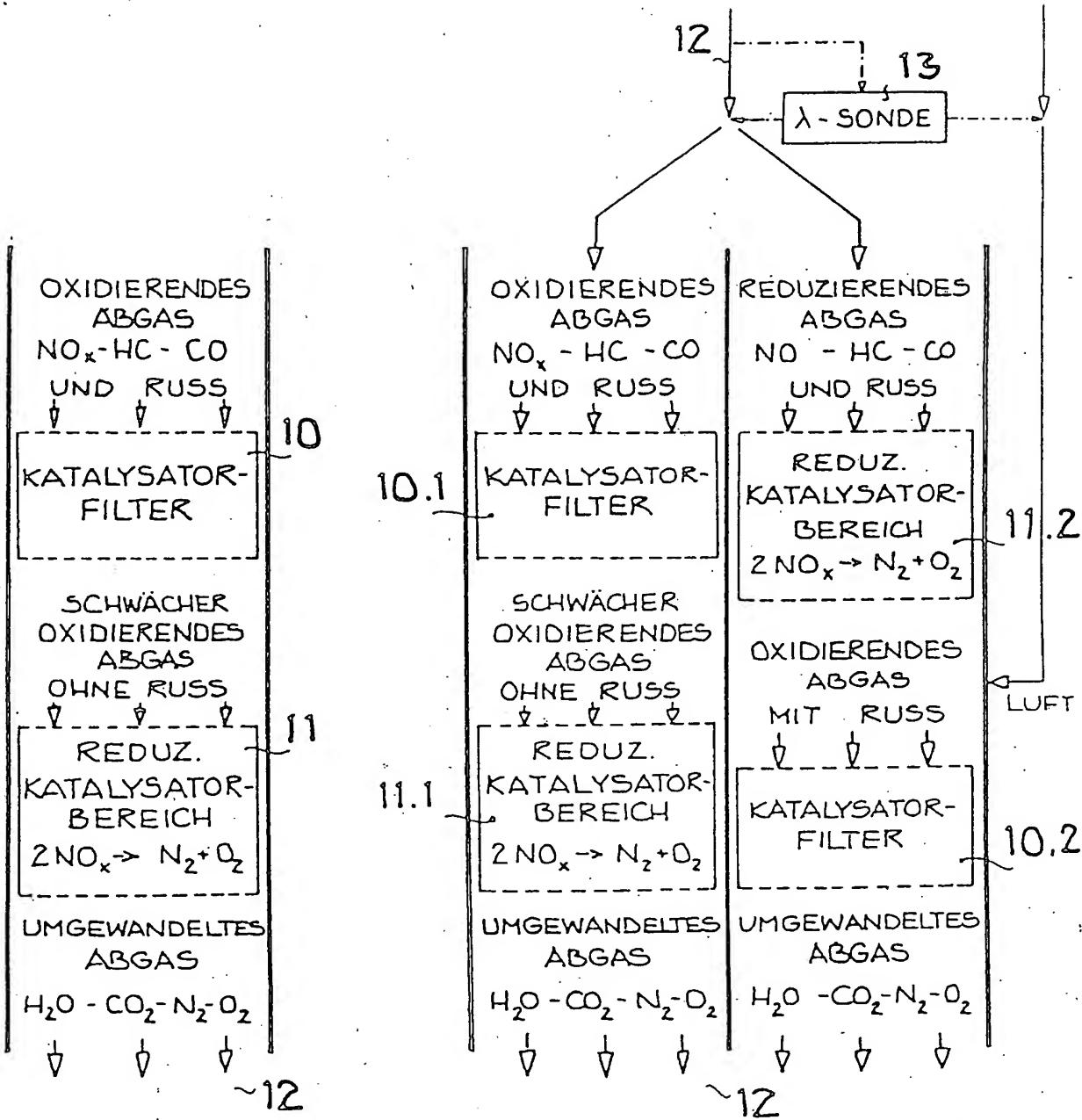


Fig.1

Fig.2

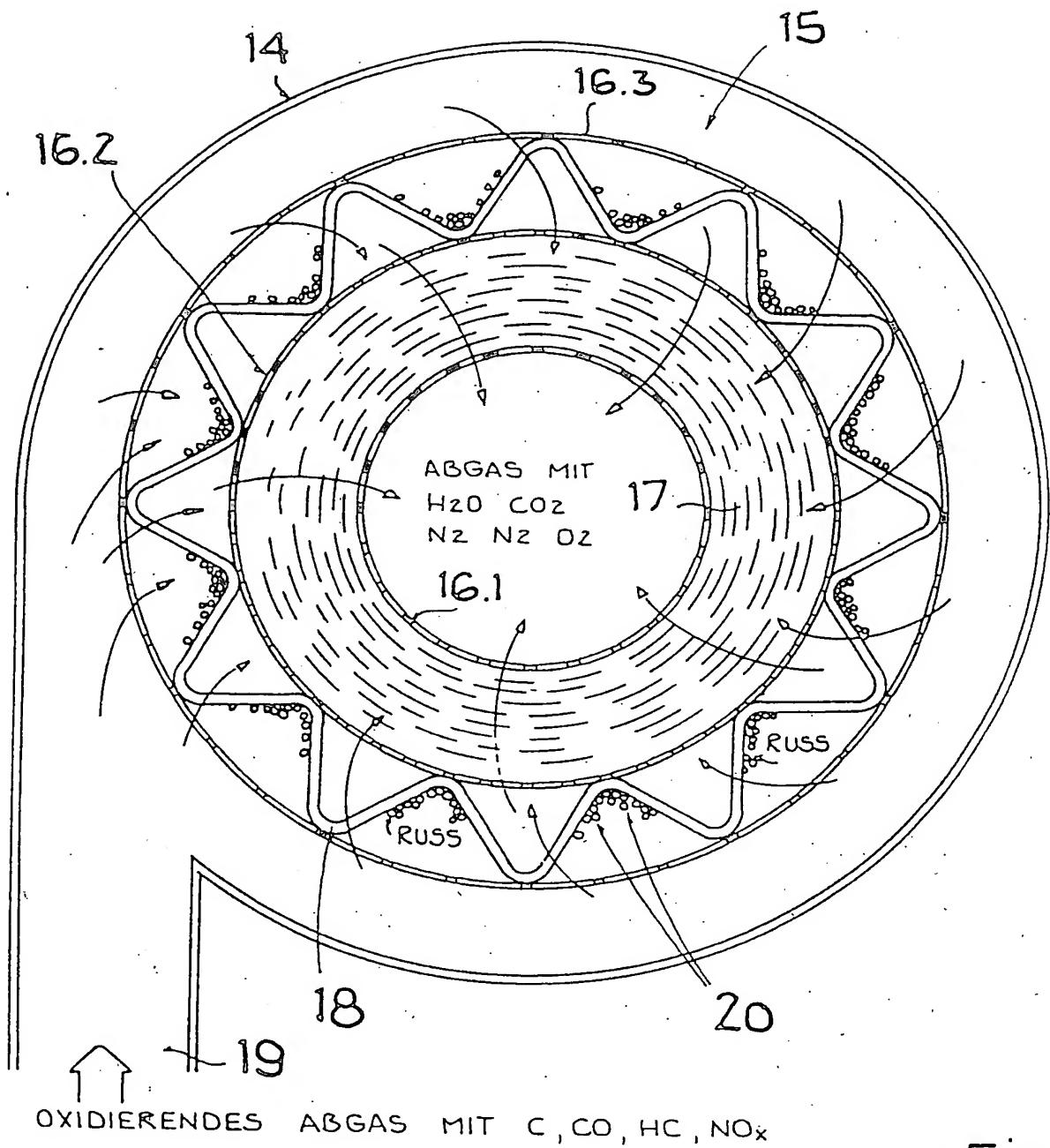


Fig.3

Kop.

(19) BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

(12) Offenlegungsschrift  
(11) DE 3337903 A1

(51) Int. Cl. 3:  
B 01 D 53/36

F 01 N 3/20  
B 01 J 35/04  
B 01 J 35/06  
B 01 J 23/74

(21) Aktenzeichen: P 33 37 903.3  
(22) Anmeldetag: 19. 10. 83  
(43) Offenlegungstag: 9. 5. 85

(71) Anmelder:

Reif, Gerhard, 7114 Windischenbach, DE; Baum,  
Werner, 7101 Flein, DE

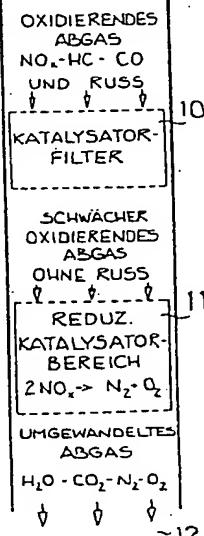
(72) Erfinder:

gleich Anmelder

(54) Katalysatoranordnung

Eine Katalysatoranordnung zum Reduzieren und zum Oxidieren von Schadstoffen in heißen oxidierenden Abgasen weist in Strömungsrichtung des Abgases gesehen zunächst einen oxidierenden Bereich (10) und dahinter einen reduzierenden Bereich (11) auf. Der die Oxidation begünstigende Bereich ist vorzugsweise als Katalysatorfilter (10) ausgebildet. Dadurch ist es möglich, aus einem Abgas zum Beispiel Ruß auszufiltrieren und in Kohlendioxid zu verbrennen. Durch diesen Verbrauch von Sauerstoff im oxidierenden Abgas gelangt nur noch ein schwächer oxidierendes Abgas zum reduzierenden Katalysatorbereich (11), der dadurch besonders wirksam arbeiten kann.

Die Katalysatoranordnung ist besonders zum Umwandeln von Schadstoffen in den Abgasen von Dieselmotoren geeignet.



DE 3337903 A1

Dr. Jean-Pierre Jeser  
Patentanwalt

Lerchenstraße 56  
D-7100 Heilbronn

J/ho  
REBA-003

17. Okt. 1983

Gerhard Reif  
Pfödelbacher Str. 7  
7114 Windischenbach

Werner Baum  
Schillerstraße 18  
7101 Flein

---

Katalysatoranordnung

---

ANSPRÜCHE

1. Katalysatoranordnung (15) mit einem Reduktionen begünstigenden Katalysatorbereich (11) und einem Oxidationen begünstigenden Katalysatorbereich (10) zum Umwandeln von Schadstoffen in heißen oxidierenden Abgasen in nicht schädliche Stoffe,  
5 dadurch gekennzeichnet, daß der reduzierende Bereich (11) in Strömungsrichtung des Abgases hinter dem oxidierenden Bereich (10) angeordnet ist.
- 10 2. Anordnung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der oxidierende Bereich ein Katalysatorfilter (10) zum Ausfiltern und Abtrennen von Ruß (20) ist.

3. Anordnung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Katalysatorfilter (10) und der reduzierende Katalysatorbereich (11) in einem Katalysatorbauteil zusammengefaßt sind.
- 5 4. Anordnung nach Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Katalysatorfilter (10) ein auf ein metallisches Siebgewebe aufgebrachtes Katalysatormaterial aufweist.
- 10 5. Anordnung nach Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Katalysatorfilter (10) ein in einem Faservlies angeordnetes Katalysatormaterial aufweist.
- 15 6. Anordnung nach einem der Ansprüche 2 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß das Katalysatormaterial des Katalysatorfilters (10) Eisenoxid ist.
- 20 7. Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Anordnung gemäß Anspruch 1 eine erste Teilanordnung darstellt, zu der eine zweite Teilanordnung abgasmäßig parallel geschaltet ist, bei der ein zweiter reduzierender Katalysatorbereich (11.2) vor einem zweiten oxidierenden Katalysatorbereich (10.2) liegt (Fig. 2).
- 25 8. Anordnung nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß auch der zweite oxidierende Bereich als Katalysatorfilter (10.2) ausgebildet ist.
9. Anordnung nach Anspruch 7 oder 8, dadurch gekennzeichnet, daß im Abgasstrom vor den beiden Teilanordnungen eine Lambdasonde (13) ange-

ordnet ist, die das Abgas in die erste Teilanordnung leitet, wenn es oxidierend wirkt, und in die zweite Teilanordnung leitet, wenn es reduzierend wirkt.

10. Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, gekennzeichnet durch die Verwendung im Abgasstrom eines Dieselmotors.

BESCHREIBUNG

Die Erfindung betrifft eine Katalysatoranordnung gemäß dem Oberbegriff des Hauptanspruchs.

Eine solche Anordnung ist aus der DE-AS 26 49 825 bekannt. Ein oxidierendes Abgas von einem Verbrennungsmotor wird 5 der Anordnung zugeführt, die zweigeteilt ist, wobei der erste Bereich Reduktionen und der zweite Oxidationen fördert. Reduziert werden Stickoxide  $\text{NO}_x$  und oxidiert wird zum Beispiel Kohlenmonoxid CO. Der erste, reduzierende Bereich ist mit Rhodium und/oder Iridium als Katalysatormaterial 10 beschichtet. Diese Edelmetalle sind in der Lage, die Reduktion von Stickoxiden  $\text{NO}_x$  auch in oxidierender Atmosphäre herbeizuführen. Der zweite Bereich ist mit Platin und/oder Palladium als Katalysatormaterial beschichtet. Diese Elemente begünstigen die Oxidation von Kohlenmonoxid CO und 15 von Kohlenwasserstoffen HC.

Die bekannte Katalysatoranordnung ist sehr teuer, da sie ausschließlich Edelmetalle als Katalysatormaterialien verwendet. Es ist wünschenswert, billigere Katalysatormaterialien zu verwenden, die aber häufig in ihrer Aktivität etwas 20 gegenüber den Edelmetallen zurückbleiben.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine Katalysatoranordnung der eingangs genannten Art anzugeben, die ohne Beeinträchtigung ihres Wirkungsgrades auch mit schwächer aktiven und billigeren Katalysatormaterialien auskommt, oder 25 bei Verwendung der gleichen Materialien einen höheren Wirkungsgrad aufweist.

Die erfindungsgemäße Lösung ist im Hauptanspruch gekennzeichnet. Vorteilhafte Ausgestaltungen und Weiterbildungen sind Gegenstand von Unteransprüchen.

Die erfindungsgemäße Katalysatoranordnung zeichnet sich da-  
durch aus, daß der reduzierende Bereich in Strömungsrichtung  
des Abgases nicht mehr vor, sondern hinter dem oxidierenden  
Bereich angeordnet ist. Dieser Anordnung liegt die Erkennt-  
nis zugrunde, daß bei Anordnungen gemäß dem Stand der Tech-  
nik, wie sie außer aus der genannten DE-AS 26 49 825 auch  
noch in ähnlicher Weise aus der DE-OS 21 58 877 und der  
DE-AS 21 39 774 bekannt sind, der reduzierende Bereich mehr  
Sauerstoff zugeführt bekommt als der oxidierende Bereich.  
Dann müssen aber besonders gute Katalysatoren verwendet  
werden, um dennoch in oxidierender Atmosphäre die Reduktion  
und in ihrer Oxidationskraft geschwächter Atmosphäre die  
Oxidation begünstigen zu können. Beim erfindungsgemäßen Auf-  
bau steht dagegen für die Oxidation die maximale Sauerstoff-  
menge aus dem Abgas zur Verfügung, während im reduzierenden  
Bereich der Sauerstoffanteil durch die zuvor erfolgte Oxi-  
dation gewisser Schadstoffe des heißen Abgases bereits ver-  
mindert ist.

Besonders wirkungsvoll arbeitet die erfindungsgemäße Anord-  
nung in Abgasen, die Rußbestandteile enthalten, wenn der  
Rußbestandteil im oxidierenden Bereich ausgefiltert und  
dort verbrannt wird. Ein solcher Katalysatorfilter ist für  
sich aus der DE-OS 29 51 316 bekannt. Als Katalysatorma-  
terial ist ein Metall oder ein Metalloxid auf ein metalli-  
sches Siebgewebe aufgebracht.

Als noch vorteilhafter hat es sich jedoch herausgestellt,  
das Katalysatormaterial nicht auf ein Metallsieb, sondern  
auf ein Faservlies aufzubringen, oder den Katalysator in  
Pulverform in das Faservlies einzubringen, entweder schon  
bei der Herstellung desselben oder durch nachträgliches  
Tauchen in eine Dispersion des Katalysatorpulvers.

Die Abbrenntemperatur von ausgefiltertem Ruß wird ganz besonders dann heruntergesetzt, wenn als Katalysatormaterial zum Begünstigen des Abbrennens Eisenoxid,  $\text{Fe}^{\text{II}} \text{Fe}_2^{\text{III}} \text{O}_4$  verwendet wird.

5 Bei Abgasen von Gaserzeugern, die in unterschiedlichen Lastbereichen einmal oxidierende und andererseits reduzierende Abgase abgeben, ist es von Vorteil, eine erfindungsgemäße Katalysatoranordnung mit einer bekannten parallel zu schalten, bei der ein reduzierender Katalysatorbereich vor einem 10 oxidierenden Bereich liegt. Das Umschalten zwischen den beiden parallel liegenden Teilanordnungen wird durch eine Lambdasonde im Abgasstrom vorgenommen, die ermittelt, ob das Abgas oxidierend oder reduzierend ist.

15 Abgaserzeuger, die überwiegend oxidierende Abgase liefern, sind zum Beispiel Dieselmotoren. Daher ist die Anwendung einer erfindungsgemäßen Katalysatoranordnung bei diesen Motoren besonders vorteilhaft, insbesondere wenn der oxidierende Bereich als Katalysatorfilter ausgebildet wird.

20 Die Erfindung wird im folgenden an Hand von Figuren näher erläutert. Es zeigen:

Fig. 1 Ein Flußdiagramm über den Strom von Abgas durch verschiedene Katalysatorbereiche;

25 Fig. 2 ein Flußdiagramm des Stromes von Abgas durch verschiedene Katalysatorbereiche zweier umschaltbarer Katalysator-Teilanordnungen; und

Fig. 3 einen schematischen Querschnitt durch eine in einem Gehäuse angeordnete Katalysatoranordnung.

Gemäß Fig. 1 strömt ein oxidierendes Abgas, zum Beispiel von einem Dieselmotor, in einen Katalysatorfilter 10. Das Abgas enthält zum Beispiel Stickoxide  $\text{NO}_x$ , Kohlenwasserstoffe HC, Kohlenmonoxid CO und Ruß C. Der Katalysatorfilter 10 wirkt oxidierend, stellt also den oxidierenden Bereich einer Katalysatoranordnung dar. Demgemäß werden durch den Katalysator Kohlenwasserstoffe durch Umsetzen mit Sauerstoff in Wasser und Kohlendioxid und Kohlenmonoxid in Kohlendioxid umgesetzt. Ruß C bleibt am Filter hängen und wird ebenfalls in Kohlenmonoxid verbrannt.

Das den Katalysatorfilter 10 verlassende Abgas enthält keine oxidierbaren Teile, insbesondere keinen Ruß mehr. Durch das Umsetzen der oxidierbaren Gasbestandteile und durch das Verbrennen des Rußes wirkt das den Katalysatorfilter 10 verlassende Abgas aber schwächer oxidierend als das Abgas, das in ihn eingeleitet worden ist. Dieses schwächer oxidierende Abgas wird einem reduzierenden Katalysatorbereich 11 zugeleitet, in dem, in der immer noch oxidierend wirkenden Atmosphäre, Stickoxid  $\text{NO}_x$  in Stickstoff und Sauerstoff aufgespalten werden. Katalysatormaterialien, die eine solche Reduktion in oxidierender Atmosphäre ermöglichen, sind zum Beispiel Rhodium oder Iridium oder Raney-Kobalt.

Durch die Wirkung der Katalysatoranordnung mit dem oxidierend wirkenden Katalysatorfilter 10 und dem reduzierend wirkenden Katalysatorbereich 11 sind die aufgezählten Schadstoffe schließlich in Wasser, Kohlendioxid, Stickstoff und Sauerstoff umgewandelt.

Es ist auch möglich, die Anordnung gemäß Fig. 1 als Teilanordnung zusammen mit einer herkömmlichen Anordnung anzuwenden, wie dies in Fig. 2 dargestellt ist. Dies empfiehlt sich dann, wenn das Abgas abhängig von unterschiedlichen

Verbrennungsbedingungen einmal oxidierend und einmal reduzierend wirken kann, wie dies vor allem bei Dieselmotoren und bei Hausbrand-Abgasen vorkommt. Zu diesem Zweck ist in die Abgasleitung 12 vom Abgaserzeuger eine Lambdasonde 13 geschaltet. Derartige Lambdasonden ermitteln, ob Gasatmosphären von Abgasen einen Sauerstoffüberschüß in bezug auf oxidierbare Abgasbestandteile enthalten oder nicht, d. h. ob das Abgas oxidierend oder reduzierend ist. Wird ein oxidierendes Abgas festgestellt, so erfolgt ein Umschalten auf eine obere Teilanordnung, die genauso wie die Anordnung in Fig. 1 aufgebaut ist und ein erstes Katalysatorfilter 10.1 und einen ersten reduzierenden Katalysatorbereich 11.1 aufweist.

Ermittelt die Lambdasonde dagegen ein reduzierend wirkendes Abgas, so schaltet sie auf die in Fig. 2 unten eingezeichnete zweite Teilanordnung um, die ähnlich wie herkömmliche Katalysatoranordnungen aufgebaut ist. Es ist jedoch zu beachten, daß für den oxidierend wirkenden Katalysatorbereich bei der unteren Teilanordnung ein zweites Katalysatorfilter 10.2 verwendet ist, was von herkömmlichen Anordnungen nicht bekannt ist, wo nicht filternde oxidierende Katalysatorbereiche verwendet werden.

Die untere Teilanordnung gemäß Fig. 2 weist vor dem bereits erwähnten zweiten Katalysatorfilter 10.2 einen zweiten reduzierenden Katalysatorbereich 11.2 auf. Diesem werden nach dem Umschalten durch die Lambdasonde die reduzierenden Abgase von der Abgasleitung 12 zugeführt. Es erfolgt dann ein Umwandeln von Stickoxiden  $\text{NO}_x$  in Stickstoff und Sauerstoff. Das Abgas aus dem reduzierend wirkenden Katalysatorbereich 11.2 wird mit Sauerstoff vermischt, wodurch ein oxidierendes Abgas gebildet wird, das noch Kohlenwasserstoffe, Kohlenmonoxid und Ruß C aufweist. Der zugeführte Sauerstoff

röhrt von zugeführter Verbrennungsluft her, welches Zuführen ebenfalls durch die Lambdasonde 13 gesteuert wird.

Im zweiten Katalysatorfilter 10.2 wird der Ruß ausgefiltert und bei niedriger Temperatur zu Kohlendioxid  $\text{CO}_2$  verbrannt.

5 In diesem oxidierend wirkenden Katalysatorbereich werden auch die Kohlenwasserstoffe und das Kohlenmonoxid in Wasser und Kohlendioxid umgewandelt.

Das Umschalten durch die Lambdasonde 13 ermöglicht es, Schadstoffe in oxidierenden Abgasen immer mit optimalem

10 Wirkungsgrad in Wasser, Kohlendioxid, Stickstoff und Sauerstoff umzuwandeln.

Bei den Flußplänen gemäß den Fig. 1 und 2 sind die oxidierend wirkenden Katalysatorbereiche als Katalysatorfilter 10 ausgebildet. Diese Filter finden, wie oben bereits erwähnt,

15 dann Anwendung, wenn das Abgas Ruß enthält, also zum Beispiel von einem Dieselmotor oder von Hausbrand herrührt.

In diesem Fall wirkt die anmeldegemäße Anordnung besonders stark, da dann eine besonders starke Absenkung des oxidierenden Anteils im Abgas erfolgt, so daß der nachgeschaltete

20 reduzierende Katalysatorbereich besonders effektiv arbeiten kann. Für Abgase, die keinen Ruß enthalten, wie z. B. die Abgase von Ottomotoren, ist es aber auch möglich, den oxidierenden Katalysatorbereich in herkömmlicher Art und Weise, also nicht filternd, auszubilden.

25 Der Querschnitt gemäß Fig. 3 zeigt eine in einem Gehäuse 14 angeordnete Katalysatoranordnung 15. Diese weist einen inneren Blechsiebzylinder 16.1 und einen konzentrisch mit diesem angeordneten mittleren Blechsiebzylinder 16.2 auf. Diese sind genauso ausgebildet wie herkömmliche Blechsiebzylinder von Luftfiltern.

Die beiden Blechsiebzylinder 16.1 und 16.2 dienen als Stütze für ein Faservlies 17 aus anorganischen Oxidfasern. In die Oxidfasern ist als Katalysatormaterial Raney-Pulver eingebettet. Dieses Material ist besonders wirkungsvoll zur Reduktion von Stickoxiden  $\text{NO}_x$  auch in oxidierender Atmosphäre.

Nach außen schließt sich an den mittleren Blechsiebzylinder 16.2 ein Sternfilter 18 an, das mit einem oxidierend wirkenden Katalysatormaterial beschichtet ist. Der Sternfilter 18 wirkt als Katalysatorfilter 10 gemäß den Fig. 1 und 2. Besteht der Sternfilter 18 aus einem Metallgewebe, so ist er selbsttragend und bedarf keines weiteren Haltes. Ist der Sternfilter dagegen aus einem Faservlies gefertigt, so ist außen um ihn noch ein äußerer Blechsiebzylinder 16.3 angeordnet, der in Fig. 3 gestrichelt dargestellt ist.

Oxidierendes Abgas, das Stickoxide  $\text{NO}_x$ , Kohlenwasserstoffe HC, Kohlenmonoxid CO und Ruß C enthält, wird durch eine Zuführöffnung 19 dem Inneren des Gehäuses 14 und damit der Katalysatoranordnung 15 zugeführt. Es durchströmt den äußeren Blechsiebzylinder 16.3 und den Sternfilter 18, von dem jedoch die im Abgas enthaltenen Rußteilchen 20 zurückgehalten werden. Die Rußteilchen 20 sind in Fig. 3 als einzelne Körner dargestellt. Tatsächlich bilden sie jedoch Agglomerate unterschiedlich großer Abmessungen. Diese Rußteilchen 20 bzw. eine aus ihnen gebildete Rußschicht wird bei relativ niedrigen Abgastemperaturen von etwa 300 °C am Sternfilter 18 abgebrannt. Dabei wird Sauerstoff verbraucht, so daß nur noch geringer oxidierendes Abgas durch den mittleren Blechsiebzylinder 16.2 zum reduzierend wirkenden Faservlies 17 strömt. Dort werden Stickoxide  $\text{NO}_x$  in Stickstoff umgewandelt. In das Innere des inneren Blechsiebzylinders 16.1 strömt dann Abgas, das keine Schadstoffe, sondern nur noch

die Umwandlungsprodukte Wasser, Kohlendioxid, Stickstoff und Sauerstoff enthält. Dieses Abgas wird durch eine nicht dargestellte Öffnung weggeleitet.

Der Aufbau gemäß Fig. 3 kann zahlreiche Abwandlungen erfahren. Insbesondere ist zu beachten, daß die Zuführöffnung 19 in das Gehäuse 14 eher schematisch dargestellt ist. Es wird eine solche Zuführung gewählt, die optimale Strömungsverhältnisse ergibt. Dies ist insbesondere dann wichtig, wenn die Katalysatoranordnung 15 bei einem Verbrennungsmotor verwendet wird. Abhängig vom Abgaserzeuger, dessen Abgase umgewandelt werden müssen, werden mehr reduzierende oder mehr oxidierende Schadstoffe anfallen. Abhängig davon sind der Aufbau, insbesondere die Abmessungen in Strömungsrichtung des oxidierenden bzw. des reduzierenden Katalysatorbereiches zu wählen.

Der Sternfilter 18 kann zum Beispiel aus einem mit Metallen oder Metalloxiden als Katalysatormaterialien beschichteten metallischen Siebgewebe bestehen, wie es in der DE-OS 29 51 316 beschrieben ist. Eine größere Tiefe des Sternfilters 18 in Durchströmungsrichtung der Abgase ergibt sich dann, wenn statt eines Metallsiebes ein Faservlies verwendet wird, in das oxidierend katalytisch wirksame Bestandteile eingebettet sind. Bei Verwendung eines solchen Faservlieses ist die Maschenweite größer als der mittlere Durchmesser von Rußteilchen, die aber trotzdem auf Grund der vielen aufeinanderfolgenden Fasern zurückgehalten werden. Die Rußteilchen weisen vor ihrer Agglomeration einen Durchmesser von etwa 25 - 250 nm auf.

Als Faservlies kann zum Beispiel ein solches verwendet werden, wie es unter der Bezeichnung "Cerablanket" oder "Cerachrome" von der Firma Manville, Frankreich erhältlich ist.

In ein derartiges Faservlies kann das katalytisch wirksame Material entweder von der Herstellung des Vlieses an oder durch nachträgliches Tauchen in eine Dispersion des Katalysatormaterials eingebracht sein. Solche Verfahren und weitere verwendbare Fasermaterialien sind in der DE-OS 29 36 927 angegeben.

Die Abgrenntemperatur von Ruß beträgt normalerweise etwa 800 °C. Wird der Ruß mit einem Faservlies ausgefiltert, so sinkt die Abgrenntemperatur auf etwa 560 - 580 °C, da derartige Faservliese, insbesondere wenn sie  $\text{Al}_2\text{O}_3$  enthalten, bereits katalytisch aktiv sind. Noch weiter lässt sich die Abgrenntemperatur heruntersetzen, wenn als katalytisch wirk-sames Material Eisenoxid,  $\text{Fe}^{\text{II}}\text{Fe}_2^{\text{III}}\text{O}_4$ , verwendet wird. Dies gilt ganz allgemein, unabhängig davon, ob dieses Material zusammen mit einem reduzierenden Bereich verwendet wird oder nur für sich. Mit Eisenoxid als Katalysator, entweder auf einem Metallsieb oder in einem Faservlies, lässt sich die Abgrenntemperatur auf etwa 300 °C herabsetzen.

Für das Faservlies 17, das das reduzierend wirkende Katalysatormaterial enthält, gilt das entsprechende, was soeben für ein Faservlies zur Aufnahme oxidierend wirkender Katalysatormaterialien angegeben wurde. Als Stickoxide reduzierende Katalysatormaterial ist pulverförmiges Raney-Kobalt besonders geeignet. Dieses kann aber statt in ein Faservlies eingebettet auch auf einen metallischen Träger aufgebracht sein. Dieser ist dann so anzuordnen, daß sich eine besonders große wirksame Oberfläche für durchströmendes Abgas ergibt.

Die anmeldegemäße Anordnung arbeitet besonders wirkungsvoll, da die Oxidation von Schadstoffen dann vorgenommen wird, wenn das Abgas noch besonders viel Oxidationsmittel aufweist und die Reduktion erst vorgenommen wird, wenn ein

Teil des Oxidationsmittels bereits im oxidierend wirkenden Bereich verbraucht ist. Werden gleich gute Katalysatoren verwendet wie bisher, so ergibt sich dadurch eine Verbesserung der Wirkung. Werden billige, nicht so wirksame Katalysatoren eingesetzt, so ergibt sich dennoch der gleiche Wirkungsgrad wie bisher. Die erhöhte Wirksamkeit der Anordnung ermöglicht es auch, ohne Einbuße des Wirkungsgrades im Vergleich zu bisher, die Anordnung kompakter aufzubauen, also insbesondere ein Katalysatorfilter und den reduzierenden Bereich in einem Katalysatorbauteil zusammenzufassen.

Nummer:  
Int. Cl.<sup>3</sup>:  
Anmeldetag:  
Offenlegungstag:

33 37 903  
B 01 D 53/36  
19. Oktober 1983  
9. Mai 1985

- 15 -

1/2

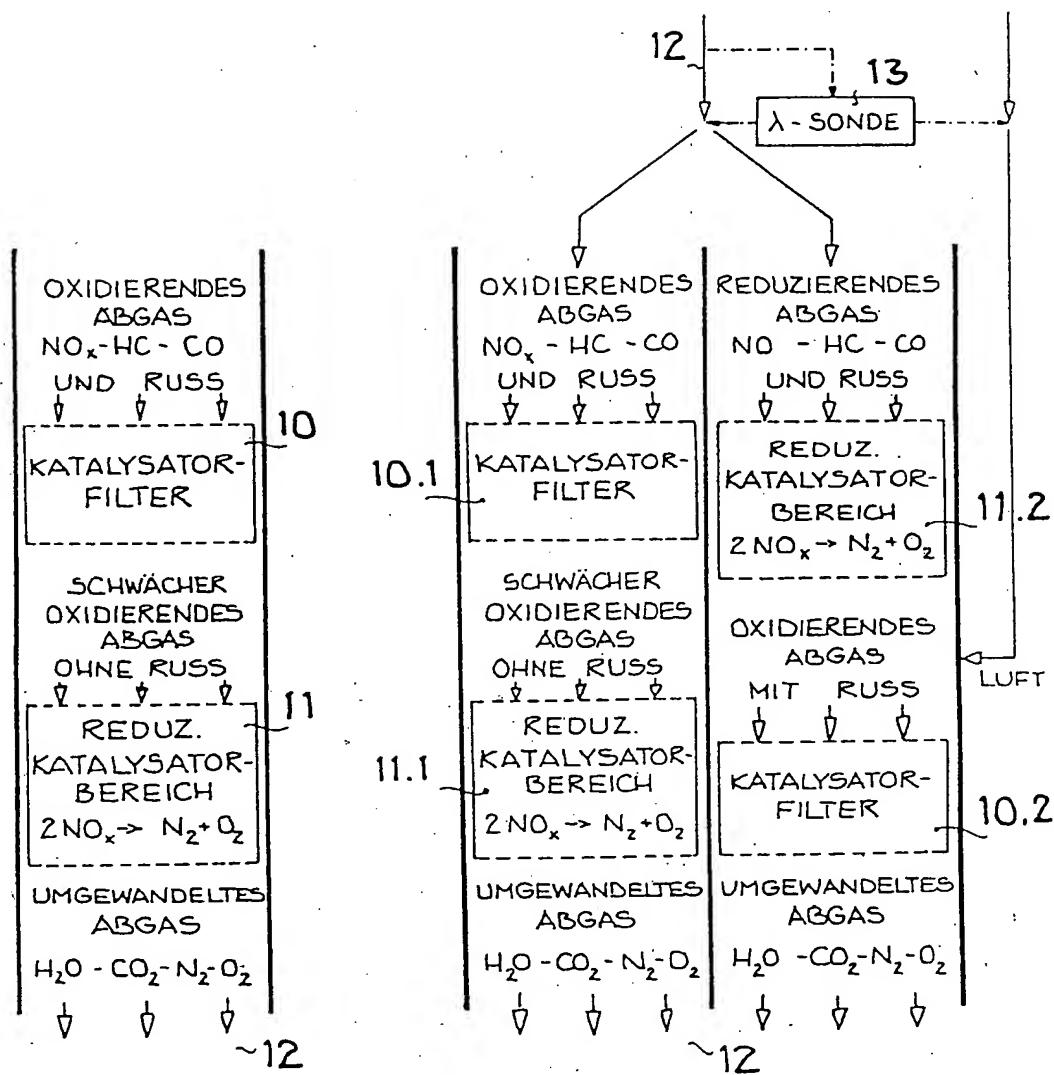


Fig.1

Fig.2

14.

3337903

2/2

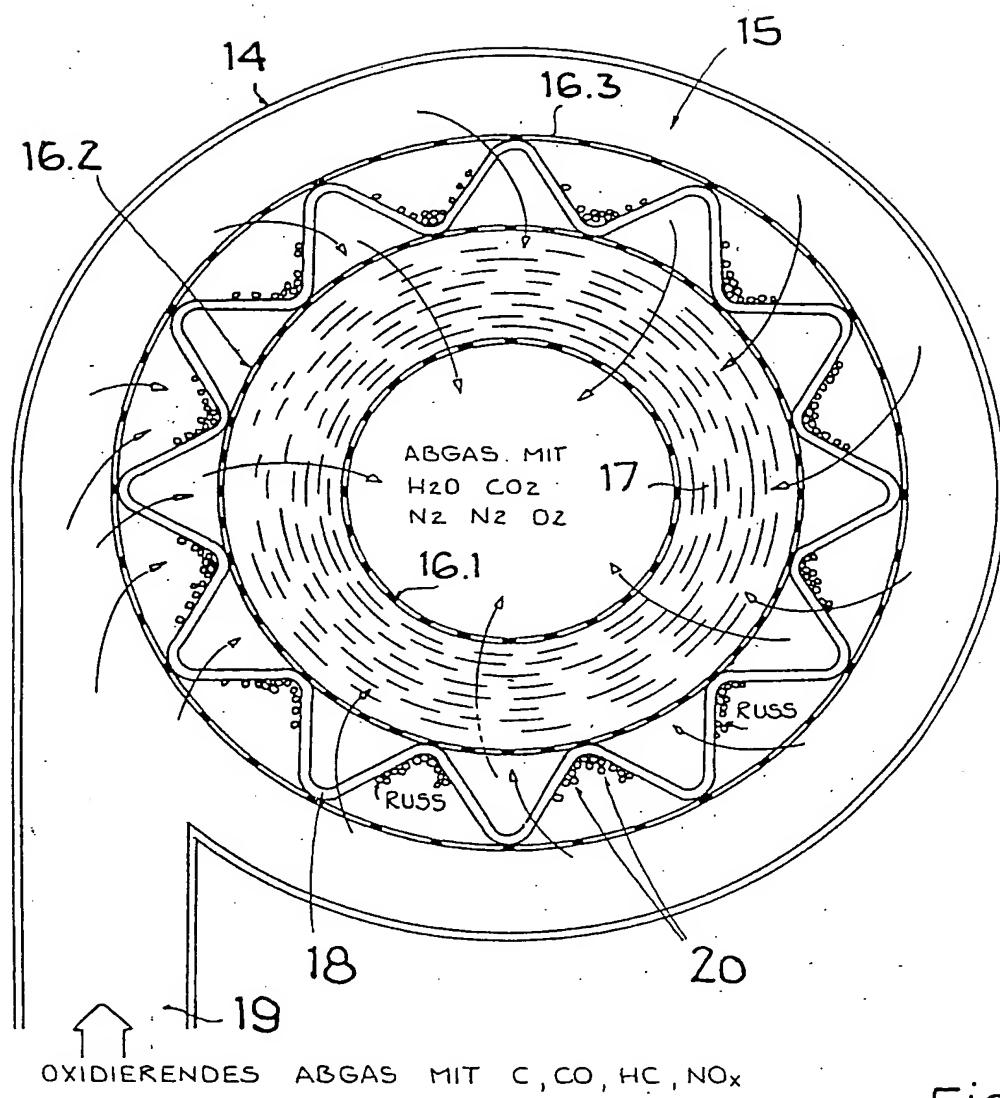


Fig.3